

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 07 March 2001 (07.03.01)	
International application No. PCT/EP00/06377	Applicant's or agent's file reference Le A 33 899-WO Lin
International filing date (day/month/year) 06 July 2000 (06.07.00)	Priority date (day/month/year) 19 July 1999 (19.07.99)
Applicant KRATSCHMER, Silke et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

19 January 2001 (19.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Juan Cruz
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

OC

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AM DEM GEBIET DES PATENTWESSENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>Le A 33 899-W0 Lin</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 00/ 06377</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>06/07/2000</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>19/07/1999</b>

Anmelder

**BAYER AKTIENGESELLSCHAFT**

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. \_\_\_\_\_

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☒ keine der Abb.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS


## PCT

REC'D 24 JUL 2001

WIPO PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 899-WO Lin		<b>WEITERES VORGEHEN</b>		siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/06377		Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 06/07/2000		Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 19/07/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G64/04				
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT				
<p>1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p><input type="checkbox"/> Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).</p> <p>Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.</p>				
<p>3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>I <input checked="" type="checkbox"/> Grundlage des Berichts</li> <li>II <input type="checkbox"/> Priorität</li> <li>III <input type="checkbox"/> Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit.</li> <li>IV <input type="checkbox"/> Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</li> <li>V <input checked="" type="checkbox"/> Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</li> <li>VI <input type="checkbox"/> Bestimmte angeführte Unterlagen</li> <li>VII <input type="checkbox"/> Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</li> <li>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</li> </ul>				
Datum der Einreichung des Antrags 19/01/2001		Datum der Fertigstellung dieses Berichts 20.07.2001		
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465		Bevollmächtigter Bediensteter Von Kuzenko, M Tel. Nr. +49 89 2399 8605		



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):  
**Beschreibung, Seiten:**

1-14                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-7                      ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                Nr.:
- ☐ Zeichnungen,              Blatt:

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

**1. Feststellung**

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-7
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	1-7
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	

- 2. Unterlagen und Erklärungen**  
**siehe Beiblatt**

**VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**cf V**

**Zitierte Dokumente:**

D1: EP-A-0 685 503

D2: EP-A-0 337 207

D3: US-A-4 608 430

**1. Neuheit**

**1.1 Anspruch 1** beansprucht ein Produkt welches durch ein Verfahren charakterisiert ist.

Es handelt sich dabei um, nach dem Umesterungsverfahren hergestellte, verzweigungsarme, thermoplastische, aromatische Polycarbonate mit Gewichtsmittelmolekulargewichten  $M_w$  zwischen 2.000 und 150.000 auf Basis von Diphenolen und phenolischen Kettenabbrechern der Formel (I) (worunter z.B. auch Phenol, Isooctylphenol, t-Butylphenol oder Cumylphenol fallen), welche dadurch charakterisiert werden, daß nach Totalverseifung bestimmte Strukturelemente gemäß Formel (II) einen Wert von kleiner 300 ppm aufweisen.

**1.2 D1** offenbart ein Umesterungsverfahren, auf der Basis von Diphenolen, zur Herstellung von lösungsmittelfreien Polycarbonaten. Diese aromatischen Polycarbonate haben einen  $M_w$ -Wert von 18.000 bis 60.000.

Zur Begrenzung der mittleren Gewichtsmolmassen  $M_w$  werden "in bekannter Weise" Molmassenregler wie beispielsweise Alkylphenol eingesetzt.

Inwieweit nach Totalverseifung bestimmte Strukturelemente gemäß Formel (II) entstehen ist zwar in D1 nicht offenbart, nach der Lehre von Anspruch 1 muß jedoch der Einsatz von Kettenabbrechern gemäß Formel (I) zwangsläufig zu Produkten führen, die unter den Schutzbereich des vorliegenden Anspruches 1 fallen.

Daher ist der Gegenstand des vorliegenden Hauptanspruches nicht mehr neu.  
Art. 33(2) PCT.

**2. Erfinderische Tätigkeit**

Die Verwendung von Kettenabbrechern zur Herstellung von lösungsmittelfreien Polycarbonaten gemäß Formel (I) ist bereits bekannt. Daher ist ein

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

Umesterungsverfahren, wie in Anspruch 1 formuliert, Stand der Technik. Eine erfinderische Tätigkeit kann derzeit nicht gesehen werden.

Art. 33(3) PCT.

**cf VIII**

1. Mängel in Bezug auf Artikel 6 PCT
  - 1.1 Zeile 19 von Anspruch 1 bezieht sich auf eine "Formel VI" welche jedoch in keinem der Ansprüche zu finden ist.
  - 1.2 Aus Tabelle 1 ist zu entnehmen, daß der Hauptunterschied zwischen dem Vergleichsbeispiel und den erfindungsgemäßen Beispielen 1 bis 4 darin liegt, daß nur bei Verwendung von Tetraphenylphosphoniumphenolat als Katalysator die gewünschte niedrige Konzentration von Verbindungen der Formel (II) erreicht wird. Dieses wesentliche technische Merkmal fehlt in Anspruch 1.
  - 1.3 Im Vergleichsbeispiel 1 wird auf Seite 12, Zeile 12 Ammoniumhydroxidlösung erwähnt. Im Beispiel 1 heißt es aber "Wie Vergleichsbeispiel 1, nur werden statt **Tetramethylammoniumhydroxid** 4,9 mg Tetraphenylphosphoniumphenolat zugegeben."

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 899-WO Lin	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/06377	International filing date (day/month/year) 06 July 2000 (06.07.00)	Priority date (day/month/year) 19 July 1999 (19.07.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 64/04		
Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 19 January 2001 (19.01.01)	Date of completion of this report 20 July 2001 (20.07.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**I. Basis of the report**

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-14, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☒ the claims, Nos. 1-7, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims		YES
	Claims	1-7	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-7	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**Citations

D1: EP-A-0 685 503

D2: EP-A-0 337 207

D3: US-A-4 608 430

**1. Novelty**

**1.1 Claim 1** claims a product which is characterised by a process.

The claim relates to lightly branched thermoplastic aromatic polycarbonates produced by transesterification and with weight average molecular weights  $M_w$  between 2,000 and 150,000, based on diphenols and phenolic chain terminators of formula (I) (which include, for example, phenol, isooctylphenol, t-butylphenol and cumylphenol), characterised in that after total saponification certain structural elements of formula (II) are present in a proportion of less than 300 ppm.

**1.2** Document D1 discloses a transesterification process which uses diphenols and is designed to produce solvent-free polycarbonates. These aromatic

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

polycarbonates have an  $M_w$  value of between 18,000 and 60,000. To limit the weight average molecular weight  $M_w$ , molar mass regulators such as alkylphenol are used "in the known way". Although D1 does not indicate whether structural elements of formula (II) are produced after total saponification, the use of chain terminators of formula (I) as per the teaching of Claim 1 must necessarily yield products which fall within the scope of protection of Claim 1.

The subject matter of Claim 1 of the present application therefore lacks novelty (PCT Article 33(2)).

2. Inventive step

The use of chain terminators to produce solvent-free polycarbonates of formula (I) is already known. Consequently, a transesterification process as per Claim 1 belongs to the prior art, and it is not possible to acknowledge an inventive step at this time (PCT Article 33(3)).

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## VIII. Certain observations on the international application

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. Inadequacies under PCT Article 6
  - 1.1 Line 19 of Claim 1 refers to a "formula VI", yet this formula is not found in any of the claims.
  - 1.2 Table 1 indicates that the main difference between the comparative example and Examples 1 to 4 according to the invention is the fact that the desired low concentration of compounds of formula (II) can only be obtained if tetraphenyl phosphonium phenolate is used as a catalyst. This essential technical feature is not specified in Claim 1.
  - 1.3 Comparative Example 1 mentions an ammonium hydroxide solution (page 12, line 12), but Example 1 reads "As in Comparative Example 1, except that 4.9 mg tetraphenyl phosphonium phenolate are added instead of **tetramethyl** ammonium hydroxide".

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



### Polycarbonat und dessen Formkörper

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein neues Polycarbonat und seine Verwendung als Material zur Herstellung von Formkörpern und Halbzeugen, besonders für transparente Anwendungen, wie Datenspeicher oder Audio-Compact-Discs, Platten, Stegplatten, Folien, Lampengehäuse, Verscheibungen, insbesondere Automobilverscheibungen, Streuscheiben, aber auch für elektrische Anwendungen oder den Hausbau.

Die Herstellung von aromatischen Polycarbonaten nach dem Schmelzeumesterungsverfahren ist literaturbekannt und beispielsweise in der Encyclopedia of Polymer Science, Vol. 10 (1969), Chemistry and Physics of Polycarbonates, Polymer Reviews, H. Schnell, Vol. 9, John Wiley and Sons, Inc. (1964) sowie ausgehend von der DE 1 031 512 in einigen Patenten beschrieben.

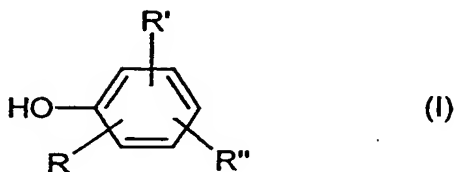
In der EP-B-360 578 sind Polycarbonate mit von Phenol verschiedenen Endgruppen beschrieben. Die gemäß der EP 360 578 erhaltenen Polycarbonate haben einen gegenüber den in Lösung synthetisierten Polycarbonaten einen deutlich erhöhten Gehalt an Fehlstrukturen. Als Folge dessen besitzen derartige Materialien Nachteile in der Schmelzestabilität, der Thermostabilität und der Farbkonstanz.

Die Aufgabe bestand also darin, Polycarbonate und ein Verfahren zu ihrer Herstellung zu entwickeln, die über größere Stabilität verfügen.

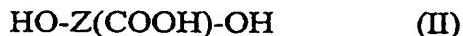
Die Aufgabe wurde gelöst durch die Synthese von Polycarbonaten mit einer deutlich verringerten Konzentration an Fehlstrukturen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind lösungsmittelfreie, nach dem Umesterungsverfahren hergestellte, verzweigungsarme, thermoplastische, aromatische Polycarbonate mit Gewichtsmittelmolekulargewichten  $M_w$  zwischen 2 000 und 150 000,

vorzugsweise zwischen 4 500 und 55 000, auf Basis von Diphenolen, Kettenabbrechern der Formel (I)



worin R, R' und R'' unabhängig voneinander H, gegebenenfalls verzweigte C<sub>1</sub>-C<sub>34</sub>-Alkyl/Cycloalkyl, C<sub>7</sub>-C<sub>34</sub>-Alkaryl oder C<sub>6</sub>-C<sub>34</sub>-Aryl darstellen können und gegebenenfalls Verzweigern, dadurch gekennzeichnet, dass Strukturelemente der Formel (II)

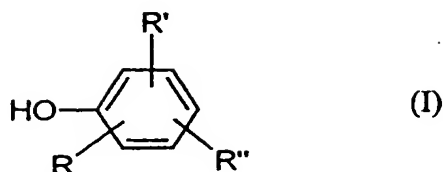


einen Wert nach Totalverseifung und HPLC-Bestimmung von kleiner 300 ppm, bevorzugt zwischen 0,03 ppm und 250 ppm aufweist, wobei Z die für Formel (VI) genannte Bedeutung hat und die Säuregruppe in ortho-Stellung zu einer Hydroxygruppe steht.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate zeigen im Vergleich zu üblicherweise fehlstrukturierten Polycarbonaten eine wesentlich erhöhte Hydrolysefestigkeit und eine verbesserte kritische Dicke bei sonst vergleichbaren mechanischen und thermischen Eigenschaften.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate werden aus Dihydroxyverbindungen, Dicarbonaten, Kettenabbrechern und gegebenenfalls Verzweigern in der Schmelze hergestellt.

Kettenabbrecher im Sinne der Erfindung sind solche der Formel (I)

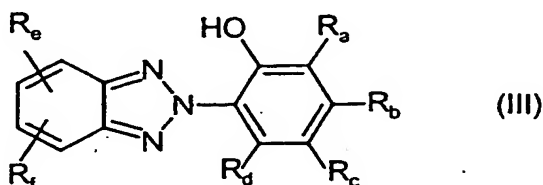


wobei R, R' und R'' unabhängig voneinander H, gegebenenfalls verzweigte C<sub>1</sub>-C<sub>34</sub>-Alkyl/Cycloalkyl, C<sub>7</sub>-C<sub>34</sub>-Alkaryl oder C<sub>6</sub>-C<sub>34</sub>-Aryl darstellen können, beispielsweise

5

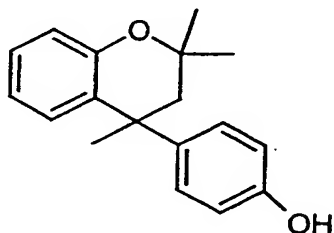
o-n-Butylphenol, m-n-Butylphenol, p-n-Butylphenol,  
 o-Isobutylphenol, m-Isobutylphenol, p-Isobutylphenol,  
 o-tert-Butylphenol, m-tert-Butylphenol, p-tert-Butylphenol,  
 o-n-Pentylphenol, m-n-Pentylphenol, p-n-Pentylphenol,  
 10 o-n-Hexylphenol, m-n-Hexylphenol, p-n-Hexylphenol,  
 o-Cyclohexylphenol, m-Cyclohexylphenol, p-Cyclohexylphenol,  
 o-Phenylphenol, m-Phenylphenol, p-Phenylphenol,  
 o-Isooctylphenol, m-Isooctylphenol, p-Isooctylphenol,  
 o-n-Nonylphenol, m-n-Nonylphenol, p-n-Nonylphenol,  
 15 o-Cumylphenol, m-Cumylphenol, p-Cumylphenol,  
 o-Naphthylphenol, m-Naphthylphenol, p-Naphthylphenol,  
 2,5-Di-tert-Butylphenol, 2,4-Di-tert-Butylphenol, 3,5-Di-tert-Butylphenol,  
 2,5-Dicumylphenol, 3,5-Dicumylphenol,  
 4-Phenoxyphenol, 2-Phenoxyphenol, 3-Phenoxyphenol,  
 20 3-Pentadecylphenol, 2-Pentadecylphenol, 4-Pentadecylphenol,  
 2-Phenylphenol, 3-Phenylphenol, 4-Phenylphenol,  
 Tritylphenol, 3-Triphenylmethylphenol, 2-Triphenylmethylphenol,

weiterhin Benzotriazolderivate der allgemeinen Formel (III)

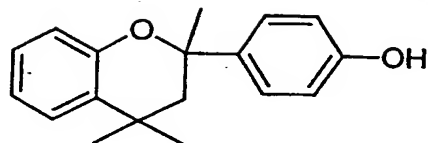


25

mit der obigen Bedeutung von R, R' und R'' für R<sub>a</sub>-R<sub>f</sub>  
und Chromanverbindungen wie

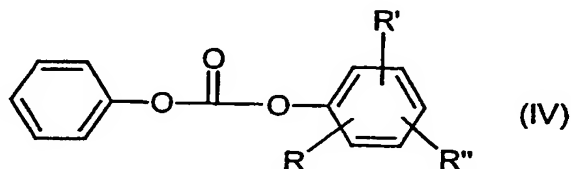


und

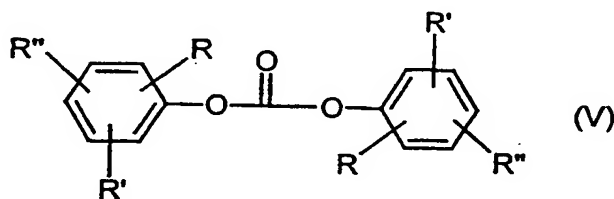


5 bevorzugt schwersiedende Phenole wie Tritylphenol, Cumylphenol, Pentadecylphenol oder Chromane,

oder auch als unter den Synthesebedingungen umesterungsfähige Verbindungen wie  
z. B. Carbonate, Oxalate, o-Carbonsäureester o. ä., bevorzugt sind die freien Phenole  
10 oder die Kohlensäurediester der Formel (IV)



und Formel (V),

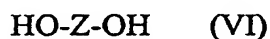


15 wobei R, R' und R'' denen der Formel (I) entsprechen. Phenole oder umesterungs-  
aktive Substanzen können einzeln oder im Gemisch der Synthese zugesetzt werden.  
Bevorzugte Mischungen sind solche mit Diphenylcarbonat. Es besteht die Möglich-  
keit, das Phenol oder die phenoltragende Verbindung zu jedem Zeitpunkt der Reak-  
20 tion zuzugeben, bevorzugt zu Beginn der Reaktion, und die Zugabe kann in mehrere

Portionen aufgeteilt werden. Der gesamte Anteil an Kohlensäureester beträgt 100 – 130 mol%, bevorzugt 103 – 120 mol%, bezogen auf die Dihydroxyverbindung.

Für die Herstellung von Polycarbonaten nach dem erfindungsgemäßen Verfahren kann ein Kettenabbrecher oder aber auch ein Gemisch aus mehreren Kettenabbrechern verwendet werden, so dass im erfindungsgemäßen Polycarbonat Phenol, aber auch Phenol neben anderen Kettenabbrechern als Endgruppe vorliegen kann. Bevorzugt werden 0,4 – 17 mol%, besonders bevorzugt 1,3 – 8,6 mol% (bezogen auf die Dihydroxyverbindung) an Kettenabbrecher zugegeben. Dabei kann die Zugabe sowohl vor der Reaktion als auch ganz oder teilweise während der Reaktion erfolgen.

Dihydroxyverbindungen im Sinne der Erfindung sind solche der Formel (VI)



in denen Z ein aromatischer Rest mit 6 bis 30 C-Atomen ist, der einen oder mehrere aromatische Kerne enthalten kann, substituiert sein kann und aliphatische oder cycloaliphatische Reste bzw. Alkylaryle oder Heteroatome als Brückenglieder enthalten kann.

Beispiele für Dihydroxyverbindungen der Formel (VI) sind

Hydrochinon,

Resorcin,

Dihydroxydiphenyle,

Bis-(hydroxyphenyl)-alkane,

Bis-(hydroxyphenyl)-cycloalkane,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfide,

Bis-(hydroxyphenyl)-ether,

Bis-(hydroxyphenyl)-ketone,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide,

$\alpha,\alpha'$ - Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole  
sowie deren kernalkylierte und kernhalogenierte Verbindungen.

Diese und weitere geeignete andere Diphenole sind z. B. in den US-PS 3 028 365, 3  
148 172, 3 275 601, 2 991 273, 3 271 367, 3 062 781, 2 970 131 und 2 999 846, in  
den deutschen Offenlegungsschriften 1 570 703, 2 063 050, 2 063 052, 2 211 0956,  
der französischen Patentschrift 1 561 518 und in der Monographie "H. Schnell,  
Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York 1964"  
beschrieben.

Bevorzugte Diphenole sind beispielsweise:

4,4'-Dihydroxydiphenyl,

2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)propan,

2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)cyclohexan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-4-methylcyclohexan,

$\alpha,\alpha'$ - Bis-(4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzol,

$\alpha,\alpha'$ - Bis-(4-hydroxyphenyl)-m-diisopropylbenzol,

Bis-(4-hydroxyphenyl)sulfon,

Bis-(4-hydroxyphenyl)methan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan,

2,2-Bis-(2,6-dimethyl-4-hydroxyphenyl)propan,

2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)hexafluorpropan,

1,1-(4-Hydroxyphenyl)-1-phenylethan,

Bis-(4-Hydroxyphenyl)diphenylmethan,

Dihydroxydiphenylether,

4,4'-Thiobisphenol,

1,1-Bis-(4-Hydroxyphenyl)-1-(1-naphthyl)ethan,

1,1-Bis-(4-Hydroxyphenyl)-1-(2-naphthyl)ethan,

2,3-Dihydroxy-3-(4-hydroxyphenyl)-1,1,3-trimethyl-1*H*-inden-5-ol,

2,3-Dihydroxy-1-(4-hydroxyphenyl)-1,3,3-trimethyl-1*H*-inden-5-ol,

2,2',3,3'-Tetrahydro-3,3',3'-tetramethyl-1,1'-Spirobi[1*H*-inden]-5,5'-diol.

Besonders bevorzugt sind

Resorcin,

5 1,1-Bis-(4-Hydroxyphenyl)-1-(1-naphthyl)ethan,

1,1-Bis-(4-Hydroxyphenyl)-1-(2-naphthyl)ethan,

2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)propan,

$\alpha,\alpha'$ - Bis-(4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzol,

$\alpha,\alpha'$ - Bis-(4-hydroxyphenyl)-m-diisopropylbenzol,

10 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)cyclohexan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan,

Bis-(4-Hydroxyphenyl)diphenylmethan.

4,4'-Dihydroxydiphenyl

15 Es können sowohl ein Diphenol der Formel (VI) unter Bildung von Homopolycarbonaten als auch mehrere Diphenole der Formel (VI) unter Bildung von Copolycarbonaten verwendet werden.

20 Verzweigungsarm im Sinne der Erfindung heißt, dass der Gehalt an Formel (II) im Polycarbonat einen Wert nach Totalverseifung und HPLC-Bestimmung von weniger als 300 ppm, bevorzugt zwischen 0,03 ppm und 250 ppm, aufweist.

25 Die Polycarbonate können durch den Einsatz geringer Mengen von 0,02 bis 3,6 mol% (bezogen auf die Dihydroxyverbindung) Verzweiger bewusst und kontrolliert verzweigt werden. Geeignete Verzweiger sind die für die Polycarbonatherstellung geeigneten Verbindungen mit drei und mehr funktionellen Gruppen, vorzugsweise solche mit drei oder mehr als drei phenolischen OH-Gruppen.

Beispiele für geeignete Verzweiger sind

30 Phloroglucin,

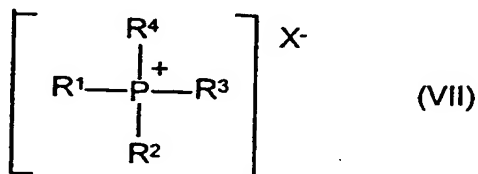
4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)heptan,

- 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)benzol,  
 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)ethan,  
 Tri-(4-hydroxyphenyl)phenylmethan,  
 2,2-Bis-[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexyl]propan,  
 5 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)phenol,  
 2,6-Bis-(2-hydroxy-5-methylbenzyl)-4-methylphenol,  
 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)propan,  
 Hexa-[4-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)phenyl]orthoterephthalsäureester,  
 Tetra-(4-hydroxyphenyl)methan,  
 10 Tetra-[4-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)phenoxy]methan,  
 1,4-Bis-[4',4''-dihydroxytriphenyl)methyl]benzol,  
 $\alpha,\alpha',\alpha''$ -Tris-(4-hydroxyphenyl)-1,3,4-triisopropenylbenzol,  
 Isatinbiskresol,  
 Pentaerythrit,  
 15 2,4-Dihydroxybenzoesäure,  
 Trimesinsäure,  
 Cyanursäure.

Besonders bevorzugt sind 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)ethan und Isatinbiskresol.

Als Katalysator für die Herstellung der erfindungsgemäßen Polycarbonate können Phosphoniumsalze verwendet werden, gegebenenfalls in Kombination mit anderen geeigneten Katalysatoren, die nicht zu Fehlstrukturen wie Formel (II) führen, wie z.B. andere Oniumverbindungen.

Phosphoniumsalze im Sinne der Erfindung sind solche der Formel (VII),





wobei  $R^{1-4}$  dieselben oder verschiedene  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyle,  $C_6$ - $C_{14}$ -Aryle,  $C_7$ - $C_{12}$ -Aralkyle oder  $C_5$ - $C_6$ -Cycloalkyle sein können, bevorzugt Methyl oder  $C_6$ - $C_{14}$ -Aryle, besonders bevorzugt Methyl oder Phenyl, und X ein Anion wie Sulfat, Hydrogensulfat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Acetat, Boranat, Hydrogenphosphate, ein Halogenid, bevorzugt Fluorid, Chlorid oder Bromid, ein Alkoholat der Formel OR sein kann, wobei R  $C_6$ - $C_{14}$ -Aryl oder  $C_7$ - $C_{12}$ -Aralkyl, bevorzugt Phenyl sein kann.

Bevorzugte Katalysatoren sind

Tetraphenylphosphoniumfluorid,  
10 Tetraphenylphosphoniumtetraphenylboranat,  
besonders bevorzugt Tetraphenylphosphoniumphenolat.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polycarbonate erfolgt beispielsweise derart, dass in der ersten Stufe das Aufschmelzen der Diphenole, der Kohlensäurediester, des Katalysators und gegebenenfalls der Alkylphenole und Verzweiger bei Temperaturen von 75°C bis 225°C, vorzugsweise von 105°C bis 235°C, besonders bevorzugt von 120°C bis 190°C, unter normalem Druck in 0,1 bis 5 Stunden, bevorzugt in 0,25 bis 3 Stunden erfolgt. Dann wird durch Anlegen von Vakuum und Erhöhung der Temperatur durch Abdestillieren des Monophenols das Oligocarbonat hergestellt. Im letzten Schritt wird bei der Polykondensation durch weiteres Erhöhen der Temperatur auf 240°C bis 325°C und bei einem Druck von < 2 mbar das Polycarbonat hergestellt.

Bei der Herstellung von Polycarbonaten nach dem Schmelzeumesterungsverfahren kann die Reaktion des Bisphenols und des Kohlensäurediesters kontinuierlich oder diskontinuierlich beispielsweise in Rührkesseln, Dünnschichtverdampfern, Fallfilmverdampfern, Rührkesselkaskaden, Extrudern, Knetern, einfachen Scheibenreaktoren und Hochviskosscheibenreaktoren durchgeführt werden.

30 Die Isolierung der erfindungsgemäßen Polycarbonate erfolgt ebenfalls in bekannter Weise, beispielsweise durch Austragen, Abspinnen und Granulierung.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate können Gewichtsmittelmolekulargewichte  $M_w$  zwischen etwa 2 000 und 150 000, vorzugsweise zwischen etwa 4 500 und 55 000 haben, wobei  $M_w$  über die relative Lösungsviskosität in Dichlormethan oder in Mischungen gleicher Gewichtsmengen Phenol/o-Dichlorbenzol ermittelt wird, wobei die Eichung durch Lichtstreuung erfolgt.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate weisen die üblichen literaturbekannten OH-Endgruppengehalte auf, die photometrisch mit Titan-tetrachlorid ermittelt werden können.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate sind bei Temperaturen von 260°C bis 320°C in üblicher Weise thermoplastisch verarbeitbar. Durch Spritzguss oder via Extrusion können beliebige Formkörper und Folien in bekannter Weise hergestellt werden.

Die erfindungsgemäßen Polycarbonate sind in Lösungsmitteln wie chlorierten Kohlenwasserstoffen, z.B. Methylenchlorid, gut löslich und können somit beispielsweise in bekannter Weise zu Gießfolien verarbeitet werden.

Gegenstand der Erfindung ist daher auch ein Verfahren zur Herstellung der verzweigungsarmen erfindungsgemäßen Polycarbonate, dadurch gekennzeichnet, dass als Katalysator Phosphoniumsalze der Formel (VII) in Konzentrationen von  $10^{-2}$  mol bis  $10^{-6}$  mol, bezogen auf 1 mol Diphenol, verwendet werden, gegebenenfalls in Kombination mit anderen geeigneten Katalysatoren, die nicht zu Fehlstrukturen wie Formel (II) führen, wie z. B. andere Oniumverbindungen.

Zur Verbesserung der Eigenschaften können den erfindungsgemäßen Polycarbonaten Hilfs- und Verstärkungsstoffe zugemischt werden. Als solche sind u. a. in Betracht zu ziehen: Stabilisatoren, Fließhilfsmittel, Entformungsmittel, Brandschutzmittel, Pigmente, fein zerteilte Mineralien, Faserstoffe, z. B. Alkyl- und Arylphosphite, -phosphate, -phosphane, niedermolekulare Carbonsäureester, Halogenverbindungen,

Salze, Kreide, Quarzmehl, Glas- und Kohlenstoffasern, Pigmente und deren Kombination.

5 Weiterhin können den erfindungsmäßen Polycarbonaten auch andere Polymere zugemischt werden, z. B. Polyolefine, Polyurethane, Polyester und Polystyrol.

Hervorragende Eigenschaften werden mit diesem Material auch in Formkörpern erzielt.

10 Weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit außerdem die Verwendung der erfindungsgemäßen verzweigungsarmen, lösungsmittelfreien, aromatischen, Polycarbonate zur Herstellung von Formkörpern und Halbzeugen, besonders für transparente Anwendungen, wie Datenspeicher oder Audio-Compact-Discs, Platten, Stegplatten, Folien, Lampengehäuse, Verscheibungen, insbesondere Automobilver-  
15 scheibungen, Streuscheiben, aber auch für elektrische Anwendungen oder den Hausbau.

## Beispiele

### Vergleichsbeispiel 1

5 In einem 500 ml Dreihalskolben mit Rührer, Innenthermometer und Vigreuxkolonne (30 cm, verspiegelt) mit Brücke werden 45,60 g (0,2 mol) Bisphenol A, 47,08 g (110 mol% bezogen auf Bisphenol A) Diphenylcarbonat, 3,7 mg (0,03 mol% bezogen auf Bisphenol A) Borsäure und 2,12 g (5 mol% bezogen auf Bisphenol A) 4-Cumylphenol eingewogen. Die Apparatur wird durch Anlegen von Vakuum und  
10 Spülen mit Stickstoff (dreimal) vom Luftsauerstoff befreit und das Gemisch bei 180°C aufgeschmolzen und 30 Minuten gerührt. Anschließend werden 36,5 mg (0,03 mol% bezogen auf Bisphenol A) einer 15%igen Ammoniumhydroxid-Lösung und 0,5 mg (0,003 mol% bezogen auf Bisphenol A) Natriumhydrogencarbonat zugegeben und weitere 30 Minuten gerührt. Die Temperatur wird auf 210°C und das  
15 Vakuum auf 200 mbar erhöht und das entstehende Phenol abdestilliert. Nach 1 Stunde wird die Temperatur auf 240°C erhöht und nach 20 Minuten das Vakuum auf 150 mbar verbessert. Nach weiteren 20 Minuten wird der Druck auf 100 mbar erniedrigt und 20 Minuten gehalten. Anschließend wird für 30 Minuten der Druck auf 15 mbar reduziert. Nun wird die Temperatur auf 270°C erhöht, das Vakuum auf  
20 0,5 mbar verbessert und nochmals 2 Stunden gerührt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

### Beispiel 1

25 Wie Vergleichsbeispiel 1, nur werden statt Tetramethylammoniumhydroxid 4,9 mg (0,004 mol% bezogen auf Bisphenol A) Tetraphenylphosphoniumphenolat (wird als Mischkristall mit 30 Gew.% Phenol bezogen auf den Mischkristall zudosiert) zugegeben. Auf die Zugabe von Natriumhydrogencarbonat und Borsäure wird verzichtet.  
30 Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

**Beispiel 2**

In einem 500 ml Dreihalskolben mit Rührer, Innenthermometer und Vigreuxkolonne (30 cm, verspiegelt) mit Brücke werden 45,66 g (0,2 mol) Bisphenol A, 47,13 g (110 mol% bezogen auf Bisphenol A) Diphenylcarbonat, 4,9 mg (0,004 mol% bezogen auf Bisphenol A) Tetraphenylphosphoniumphenolat (wird als Mischkristall mit 30 Gew.% Phenol bezogen auf den Mischkristall zudosiert) und 2,12 g (5 mol% bezogen auf Bisphenol A) 4-Cumylphenol eingewogen. Die Apparatur wird durch Anlegen von Vakuum und Spülen mit Stickstoff (dreimal) vom Luftsauerstoff befreit und das Gemisch bei 150°C aufgeschmolzen. Die Temperatur wird auf 190°C und das Vakuum auf 100 mbar erhöht und das entstehende Phenol abdestilliert. Nach 20 Minuten wird die Temperatur auf 235°C erhöht und das Vakuum auf 60 mbar verbessert. Nach 15 Minuten wird die Temperatur auf 250°C und nach weiteren 15 Minuten das Vakuum auf 5 mbar erhöht. Anschließend wird auf 280°C aufgeheizt und der Druck nach 15 Minuten auf 0,5 mbar reduziert. Nach wiederum 15 Minuten wird bei 300°C nochmals 30 Minuten gerührt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

**Beispiel 3**

In einem 500 ml Dreihalskolben mit Rührer, Innenthermometer und Vigreuxkolonne (30 cm, verspiegelt) mit Brücke werden 45,66 g (0,2 mol) Bisphenol A, 47,13 g (110 mol% bezogen auf Bisphenol A) Diphenylcarbonat, 4,9 mg (0,004 mol% bezogen auf Bisphenol A) Tetraphenylphosphoniumphenolat (wird als Mischkristall mit 30 Gew.% Phenol bezogen auf den Mischkristall zudosiert) und 3,05 g (5 mol% bezogen auf Bisphenol A) 3-Pentadecylphenol eingewogen. Die Apparatur wird durch Anlegen von Vakuum und Spülen mit Stickstoff (dreimal) vom Luftsauerstoff befreit und das Gemisch bei 150°C aufgeschmolzen. Die Temperatur wird auf 190°C und das Vakuum auf 100 mbar erhöht und das entstehende Phenol abdestilliert. Nach 30 Minuten wird die Temperatur auf 235°C erhöht, nach weiteren 30 Minuten auf

300°C. Das Vakuum wird langsam auf 0,5 mbar reduziert und weitere 30 Minuten gerührt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

#### Beispiel 4

5

10

15

1141,47 g (5 mol) Bisphenol A, 1113,94 g (104 mol% bezogen auf Bisphenol A) Diphenylcarbonat und 122,5 mg (0,004 mol% bezogen auf Bisphenol A) Tetraphenylphosphoniumphenolat (wird als Mischkristall mit 30 Gew.% Phenol bezogen auf den Mischkristall zudosiert) werden in einen Rührbehälter eingewogen. Der Behälter wird durch Anlegen von Vakuum und Spülen mit Stickstoff (dreimal) vom Luft-sauerstoff befreit und das Gemisch bei 150°C aufgeschmolzen. Die Temperatur wird auf 190°C und das Vakuum auf 100 mbar erhöht und das entstehende Phenol abdestilliert. Nach 60 Minuten wird die Temperatur auf 235°C erhöht, nach weiteren 30 Minuten wird das Vakuum langsam auf 60 mbar reduziert und weitere 15 Minuten gerührt. Anschließend wird auf 250°C erhitzt und nach 15 Minuten der Druck noch kurzzeitig auf 5 mbar erniedrigt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefasst.

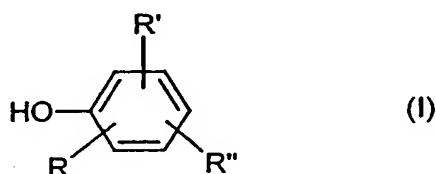
Tabelle 1

20

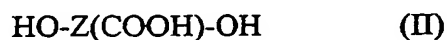
	Kettenabbrecher	Formel (II) [ppm]	Lösungviskosität
Vergleichs- beispiel 1	Cumylphenol/Phenol	303	1,142
Beispiel 1	Cumylphenol/Phenol	70	1,160
Beispiel 2	Cumylphenol/Phenol	25	1,122
Beispiel 3	Pentadecylphenol/Phenol	86	1,161
Beispiel 4	Phenol	12	1,124

**Patentansprüche**

1. Lösungsmittelfreie, nach dem Umesterungsverfahren hergestellte, verzweigungsarme, thermoplastische, aromatische Polycarbonate mit Gewichtsmittelmolekulargewichten  $M_w$  zwischen 2 000 und 150 000, vorzugsweise zwischen 4 500 und 55 000, auf Basis von Diphenolen, Kettenabbrechern der Formel (I)



worin R, R' und R'' unabhängig voneinander H, gegebenenfalls verzweigte  $C_1$ - $C_{34}$ -Alkyl/Cycloalkyl,  $C_7$ - $C_{34}$ -Alkaryl oder  $C_6$ - $C_{34}$ -Aryl darstellen können und gegebenenfalls Verzweigern, dadurch gekennzeichnet, dass Strukturelemente der Formel (II)



einen Wert nach Totalverseifung und HPLC-Bestimmung von kleiner 300 ppm, aufweisen, wobei Z die für Formel (VI) genannte Bedeutung hat und die Säuregruppe in ortho-Stellung zu einer Hydroxygruppe steht.

2. Polycarbonate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Endgruppen zu mehr als 30% der umgesetzten Endgruppen aus Alkylphenolendgruppen bestehen.
3. Polycarbonate nach einem der oben genannten Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass Strukturelemente der Formel (II) einen Wert nach Totalverseifung und HPLC-Bestimmung von zwischen 0,03 ppm und 250 ppm aufweisen.

4. Verfahren zur Herstellung der verzweigungsarmen erfindungsgemäßen Polycarbonate, dadurch gekennzeichnet, dass als Katalysator Phosphoniumsalze verwendet werden.
- 5
5. Verfahren nach Anspruch 3, in dem der Katalysator in Konzentrationen von  $10^{-2}$  mol bis  $10^{-6}$  mol, bezogen auf 1 mol Diphenol, verwendet wird.
6. Verfahren nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator Tetraphenylphosphoniumphenolat ist.
- 10
7. Verwendung der erfindungsgemäßen verzweigungsarmen, lösungsmittelfreien, aromatischen, Polycarbonate zur Herstellung von Formkörpern und Halbzeugen, besonders für transparente Anwendungen, wie Datenspeicher oder Audio-Compact-Discs, Platten, Stegplatten, Folien, Lampengehäuse, Verschleißungen, insbesondere Automobilverschleißungen, Streuscheiben, aber auch für elektrische Anwendungen oder den Hausbau.
- 15



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National Application No.  
PCT/EP 00/06377

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
IPC 7 C08G64/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 685 503 A (BAYER AG) 6 December 1995 (1995-12-06) page 3, line 36 -page 4, line 4 page 5, line 8-48	1-3
A	EP 0 337 207 A (BAYER AG) 18 October 1989 (1989-10-18) page 4, line 36-46 page 5, line 27 page 6, line 18-20	1-7
A	US 4 608 430 A (MARK VICTOR ET AL) 26 August 1986 (1986-08-26) column 3, line 1-66 column 8, line 53-56	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 October 2000

Date of mailing of the international search report

10/11/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Von Kuzenko, M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/06377

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0685503	A	06-12-1995	DE 4419230 A	07-12-1995
			DE 59503409 D	08-10-1998
			ES 2121258 T	16-11-1998
			JP 7330886 A	19-12-1995
			US 5618906 A	08-04-1997
EP 0337207	A	18-10-1989	DE 3812049 A	26-10-1989
			JP 2011627 A	16-01-1990
			US 4946927 A	07-08-1990
US 4608430	A	26-08-1986	NONE	

# INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/06377

**A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 7 C08G64/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 685 503 A (BAYER AG) 6. Dezember 1995 (1995-12-06) Seite 3, Zeile 36 -Seite 4, Zeile 4 Seite 5, Zeile 8-48	1-3
A	EP 0 337 207 A (BAYER AG) 18. Oktober 1989 (1989-10-18) Seite 4, Zeile 36-46 Seite 5, Zeile 27 Seite 6, Zeile 18-20	1-7
A	US 4 608 430 A (MARK VICTOR ET AL) 26. August 1986 (1986-08-26) Spalte 3, Zeile 1-66 Spalte 8, Zeile 53-56	1-7



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung befragt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"g" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

10/11/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Von Kuzenko, M

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung... die zur selben Patentfamilie gehören

intern: 3 les Aktenzeichen

PCT/EP 00/06377

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0685503 A	06-12-1995	DE 4419230 A	07-12-1995
		DE 59503409 D	08-10-1998
		ES 2121258 T	16-11-1998
		JP 7330886 A	19-12-1995
		US 5618906 A	08-04-1997
EP 0337207 A	18-10-1989	DE 3812049 A	26-10-1989
		JP 2011627 A	16-01-1990
		US 4946927 A	07-08-1990
US 4608430 A	26-08-1986	KEINE	